

10

⑬ 日本国特許庁(JP)

⑪ 特許出願公開

⑫ 公開特許公報(A)

昭63-164196

⑤ Int.Cl.

識別記号

庁内整理番号

④ 公開 昭和63年(1988)7月7日

H 05 B 33/24

6744-3K

審査請求 未請求 発明の数 1 (全4頁)

⑭ 発明の名称 EL素子

⑯ 特 願 昭61-310890

⑰ 出 願 昭61(1986)12月25日

⑱ 発 明 者 佐 野 興 志 雄 東京都港区芝5丁目33番1号 日本電気株式会社内  
⑲ 出 願 人 日本電気株式会社 東京都港区芝5丁目33番1号  
⑳ 代 理 人 弁理士 内 原 晋

## 明 細 書

発明の名称 EL素子

## 特許請求の範囲

(1) 高誘電率セラミックス焼結体を絶縁層に用い、この絶縁層の一方の面に電極を、他方の面に少くとも発光層と透明電極を順次積層したEL素子において、前記絶縁層の発光層と透明電極を順次積層する側の面を鏡面または鏡面に近くしたことを特徴とするEL素子。

## 発明の詳細な説明

(産業上の利用分野)

本発明は発光表示装置や近年進展の著しい情報機器端末として用いられる自己発光型ディスプレイや面光源として利用される交流駆動型EL素子で特に高誘電率セラミックス焼結体を絶縁層に用いたEL素子の輝度特性改善に関するものである。

(従来の技術)

低電圧駆動が可能で絶縁破壊に対して非常に安定な新構造のEL素子として、所謂、セラミック絶縁薄膜EL素子が1985年度インターナショナル・ディスプレイ・リサーチ・コンファレンス予稿集173頁。(Conference Record of the International Display Research Conference 1985)に報告されている。このセラミック絶縁薄膜EL素子の基本構造の断面図の一例を第3図に示す。

第3図において、4はセラミック基板、1-3はそれぞれセラミック基板4の一部分であり、1はセラミック基部、2はプラチナや銀-パラジウム合金等からなる内部電極、3はPZT系、BaTiO<sub>3</sub>系、またはPbTiO<sub>3</sub>系統のペロブスカイト化合物等からなる高誘電率のセラミック絶縁層である。7はセラミック絶縁層3の上に蒸着されたMn、TbF<sub>3</sub>、SmF<sub>3</sub>、PrF<sub>3</sub>等の発光中心を含むZnSからなる薄膜の発光層であり、真空蒸着法やスパッタ蒸着法により形成される。9は発光層7の上に成膜されたITO等からなる透明電極、10はEL素子を駆動する交流電源であり、内部電極2と透明電極9に接続されている。

## 特開昭63-164196(2)

第3図に示した例は、所謂片絶縁型のものであるが、発光層7と透明電極9の間に $Y_2O_3$ や $Ta_2O_5$ 等の薄膜絶縁層を挿入した二重絶縁構造としてもよい。

次に、セラミック絶縁薄膜EL素子の発光原理について説明する。第3図に示す発光層7は、発光開始前は単純なコンデンサと考えられる。従って内部電極2と透明電極9との間に交流電源10から交流電圧を印加すると発光層7及びセラミック絶縁層3にはそれぞれの静電容量に応じた電圧が加えられる。発光層7に加えられる電界が十分大きくなると(約 $10^6V/cm$ 以上)発光層7の伝導帯に電子が励起される。この電子は電界によって加速され、十分なエネルギーを持って発光中心に衝突する。この衝突時のエネルギーにより適当な励起状態に上がった発光中心の電子が基底状態へ戻る際に、発光中心に固有なエネルギー値を持った光が放出される。実際には結晶格子との相互作用等により発光スペクトルはある程度の広がりを持つ。発光中心として $Mn$ ,  $TbF_3$ ,  $SmF_3$ または $PrF_3$ を用いた場合は、そ

れぞれ青色、緑色、赤色、白色の発光が観測される。

このような第3図に示すセラミック絶縁薄膜EL素子の発光原理は従来のガラス基板上に薄膜の絶縁層や発光層を積層した交流駆動型の薄膜EL素子(エス・アイ・ディ・74・ダイジェスト・オブ・テクニカル・ペーパーズ84頁, (SID 74 Digest of Technical Papers))と異なるものではない。しかし、数 $10\mu m$ 程度の厚さの非常に誘電率の高いセラミック絶縁層3の効果により動作電圧の大幅な低減、絶縁破壊に対する非常に高い安定性が実現されたものであり、低コストの面光源や発光表示装置として期待されている。

(発明が解決しようとする問題点)

上述したようにセラミック絶縁薄膜EL素子は低電圧動作が可能で絶縁破壊に対する非常に高い安定性を有している。しかしながら印加電圧を徐々に増加させた場合の輝度の増加がガラス基板上に作成した従来の薄膜EL素子にくらべて少ない。ところで従来の薄膜EL素子を用いた表示用ドットマ

トリックスパネルではいわゆる単純マトリックス方式が用いられているが、この方式では印加電圧の増加に対する輝度の立上がりが鋭いほど発光がなくコントラストの良好な高品位の表示が得られ、またわずかな電圧の変調で発光状態と非発光状態を選択できるため発光と非発光を選択するに要する電力が少なくなり好都合である。従って従来の薄膜EL素子に比較して印加電圧に対する輝度の立上がりがよいセラミック絶縁薄膜EL素子はこのような単純マトリックス方式を用いたドットマトリックスパネルに適さないという欠点があった。

(問題点を解決するための手段)

本発明によれば、高誘電率セラミックス焼結体を絶縁層に用い、この絶縁層の一方の面に電極を、他方の面に少なくとも発光層と透明電極を順次積層したEL素子において、前記絶縁層の発光層と透明電極を順次積層する側の面を鏡面または鏡面に近くしたことを特徴とするEL素子が得られる。

(作用)

本発明のEL素子は薄膜層を形成するセラミック絶縁層表面を鏡面または鏡面に近い状態とすることにより従来技術の欠点であったセラミック絶縁薄膜EL素子の印加電圧に対するよい輝度の立上がりを改善し、印加電圧の増加に対する輝度の立上がりを従来の薄膜EL素子に近いものとすることに成功した。我々は、セラミック絶縁薄膜EL素子の輝度の立上がりが悪い原因を見出し、これを解決することで、初めて輝度の立上がりのよいセラミック絶縁薄膜EL素子を実現した。すなわち従来のセラミック絶縁薄膜EL素子では焼結したセラミック絶縁層表面に直接薄膜層を成膜していたため、セラミック絶縁層表面の粒界のへこんだ部分で電界の集中を生じ、このため発光がまず粒界部分から始まる。さらに印加電圧を増すと粒界だけでなく結晶粒上からも発光が始まりやがて面全体が発光する。このため面全体が一様に光り出す従来の薄膜EL素子とは異なり発光面での発光が異なる印加電圧で不均一に始まり、この結果印加電圧

特開昭63-164196(3)

に対する輝度の立上がりが見えなくなっていた。しかしセラミック絶縁層表面を研磨し鏡面または鏡面に近い状態にすることにより粒界凹部における電界集中をとり除くことができ、この結果面内における発光開始電圧の不均一がとり除かれ、輝度の立上がりが従来のガラス基板上に積層した薄膜EL素子に近くなった。

#### (実施例)

次に本発明について図面を参照して説明する。第1図は本発明の一実施例の断面構造図である。第1図において1はセラミック基板上で材料はセラミック材料として一般的なアルミナとホウケイ酸ガラスの混合物を用いた。2は内部電極であり厚さは約3 $\mu$ mとし材料としては安価な銀パラジウム合金を用いた。3は高誘電率のセラミック絶縁層であり厚さは35 $\mu$ mとした。材料はPZT系、BaTiO<sub>3</sub>系もしくはPbTiO<sub>3</sub>系などの高誘電率が得られる材料であれば何を用いてもよいが本実施例では低温焼成が可能なPbを含む複合ペロブスカイト化合物を用いた。この材料の比誘電率は常温で15000以上と非常

に大きい。セラミック基板4は、上で述べたセラミック基板上、内部電極2、セラミック絶縁層3を一体に焼結して得られる。5は本発明のセラミック絶縁層表面の鏡面である。鏡面を得るためにまず6000番のSiC研磨粉で軽く、研磨した後バフとダイヤモンドペーストを用いて鏡面状に仕上げている。この時の表面あらさは、0.05 $\mu$ m~0.15 $\mu$ mである。6はセラミック絶縁層3から次に述べる発光層7へむけての有害金属イオンの拡散を防止するとともに、素子の輝度特性を改善する介在層で各種の絶縁材料を用いることができるがここでは、TaSiO(Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>とSiO<sub>2</sub>の混合物)をスパッタ法によりセラミック絶縁層3の上に0.3 $\mu$ mの厚さに成膜した。7は介在層6の上に真空蒸着法により成膜した発光層でMnを約1モルパーセント含むZnSよりなっており、厚さは0.4 $\mu$ mとした。8は発光層7の上に成膜した絶縁層であり、材質は介在層6と同じくTaSiOで成膜法も介在層6と同じである。なお厚さは0.2 $\mu$ mとした。この絶縁層8の上にITOよりなる透明電極9をスパッタ法により成膜した。このよう

にして作成したEL素子と、セラミック絶縁層の表面をそのまま用い前記の素子と同一ロットで作成したEL素子の電圧輝度特性を第2図に示した。第2図において(A)はセラミック絶縁層の表面をそのままで作成したEL素子、(B)は本発明によるセラミック絶縁層の表面を鏡面とした後薄膜部分を作成したEL素子の特性である。(B)では発光開始する電圧は高くなるが印加電圧の増加に対する輝度の増加、いわゆる輝度の立上がりが早くなり、マトリックス駆動に適した特性となっており、本発明の効果が明らかになった。

なお、ここで述べたセラミック絶縁層薄膜EL素子の材料や寸法、製造はセラミック絶縁層の表面を鏡面とすることによる効果を確認するために述べたものであり、本発明の適用できる範囲を何ら制限するものではない。

また本実施例では介在層6及び絶縁層8を有するセラミック絶縁層薄膜EL素子を例にとって述べたが、本発明の効果は介在層6ないし絶縁層8の片方

または両方がない素子に対しても効果を有することはいふまでもない。

また本実施例と異なり、セラミック基板上を省略し、セラミック絶縁層3を厚くしてセラミック絶縁層3のみ機械的強度を保持したり、またはこれをさらに補強用の別の板に貼りつけたりすることも可能である。

#### (発明の効果)

以上述べた通り本発明のEL素子は、高誘電率セラミック焼結体を絶縁層に用い、この絶縁層の薄膜部分を成膜する側の表面を鏡面または鏡面に近い状態とすることにより、印加電圧に対する輝度の立上がりを改善したためマトリックス駆動に適した発光特性を得られるようになった。

#### 図面の簡単な説明

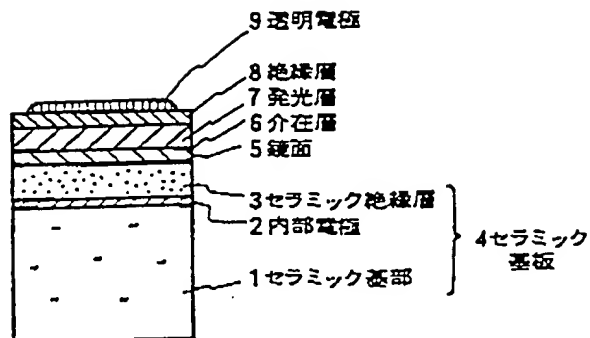
第1図は本発明の実施例を示すセラミック絶縁層薄膜EL素子の断面図、第2図は本発明のセラミック絶縁層薄膜EL素子と従来のセラミック絶縁層薄膜EL素子の電圧対輝度特性を示す図、第3図は従来のセラミック絶縁層薄膜EL素子の断面図である。

特開昭63-164196(4)

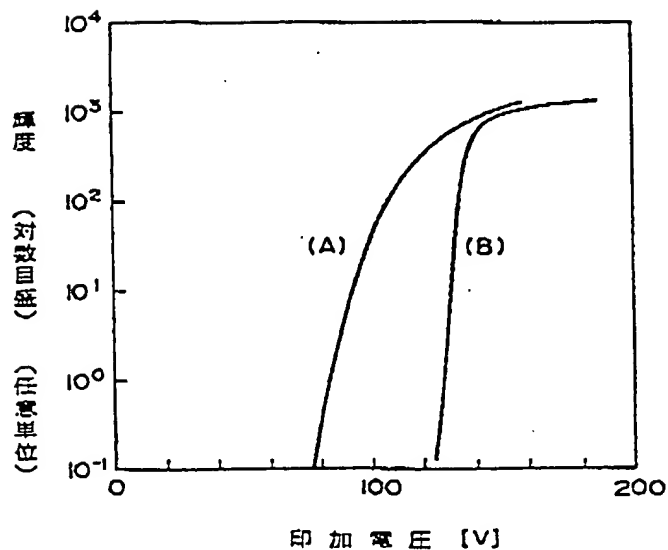
第 1 図

- 1---セラミック基部      2---内部電極  
 3---セラミック絶縁層    4---セラミック基板  
 5---研磨面  
 6---介在層  
 7---発光層  
 8---絶縁層  
 9---透明電極  
 10---交流電源

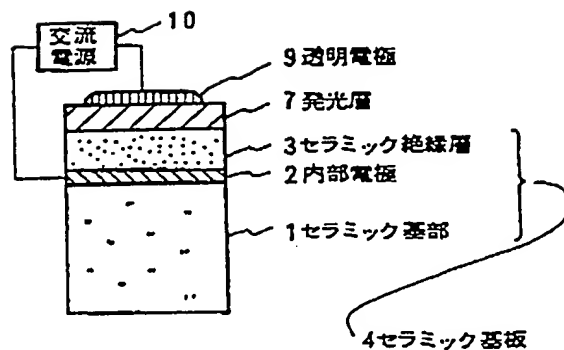
代理人 弁理士 内原 晋



第 2 図



第 3 図



**#16. Unexamined Patent Publication Sho63-164196**

1. Name of Invention:	EL Device
2. Inventor:	Sano, Yoshio
3. Applicant:	Nippon Denki [NEC]
4. Agent:	Uchihara, Shin
43. Date of Publication:	July 7, 1988
21. Application Number:	Sho61-310890
22. Application Date	December 15, 1986

**Details****Title of Invention**

EL Device

**Area of Claims**

(1) EL device, where sintered ceramic material of high dielectric constant is used for insulator layer, electrode is placed on one side of insulator layer, and at least luminescence layer and transparent electrode are formed on opposite side of same insulator layer, is characterized by the fact that insulator surface, where luminescence layer and transparent electrode are formed, is polished as mirror or almost as mirror.

**Detail Explanation of Invention****(Application Area in Industry)**

This invention relates to improvement of luminescence brightness characteristics of alternate current driven EL device. Device is used as end part of self illuminating display information equipment or surface light source. It relates especially to AC driven EL device using sintered ceramic material of high dielectric constant as insulator layer.

**(Prior Art and Problems)**

New type of low voltage driven EL device with structure very stable against insulator breakdown, or thin film ceramic insulator EL device, has been reported on p.73 in Proceedings of 1985 International Display Research Conference (Conference Record of the International Display Research Conference 1985). One example of cross section view of basic structure of thin film ceramic insulator EL device is shown in Fig. 3.

In Fig. 3, 4 is ceramic substrate, 1~3 are parts of ceramic substrate 4. 1 is ceramic substrate base, 2 is internal electrode made of platinum or silver-palladium alloy, 3 is high dielectric ceramic insulator layer made of perovskite compound of PST, BaTiO<sub>3</sub> or PbTiO<sub>3</sub> series. 7 is thin film luminescence layer, made of ZnS containing such luminescence

center as Mn, TbF<sub>3</sub>, SmF<sub>3</sub>, Pr F<sub>3</sub>, vapour deposited on ceramic insulator layer 3. using such method as vacuum vapour deposition or sputtering vapour deposition. 9 is transparent electrode film made of such material as ITO, formed on luminescence layer 7. 10 is alternate current source to drive EL device and it is connected to internal electrode 2 and transparent electrode 9.

Example shown in Fig. 3 is so called single insulator type, but it may have double insulator structure with thin film insulator layer of such material as Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> or Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> inserted between luminescence layer 7 and transparent electrode 9.

Principle of luminescence of thin film ceramic insulator EL device will be explained next. Luminescence layer 7, shown in Fig. 3, can be considered a simple condenser before starting luminescence. Alternate current voltage from alternate current source 10 is applied across interior electrode 2 and transparent electrode 9. Voltage, responding to each static capacity, is added between luminescence layer 7 and ceramic insulator layer 3. When electric field added to luminescence layer 7 is sufficiently large (approximately larger than 10<sup>6</sup> V/cm ), electrons are excited in conductive belt of luminescence layer 7. Excited electrons are accelerated by electric field and collide with luminescence centers with sufficient energy. Light, having unique energy value of particular luminescence center, will be emitted when electrons from luminescence centers, excited to appropriate energy level by collision, return to ground state.. In reality, luminescence spectrum has certain width because of such effects as mutual effect with crystal lattice. When Mn, TbF<sub>3</sub>, SmF<sub>3</sub>, Pr F<sub>3</sub> are used as luminescence centers, yellowish orange color, green color, red color and white color are observed, respectively.

This luminescence principle of thin film ceramic insulator EL device, shown in Fig. 3, is not different from that of AC driven thin film EL device of prior art, where thin film insulator layer and luminescence layer are formed on glass substrate ( SID 74 Digest of Technical Papers p.84). However, large reduction in driving voltage and very high stability against insulator breakdown have been achieved owing to ceramic insulator layer 3, several 10's μm thick, of very high dielectric constant. It is expected to become low cost surface light source or luminescence display device.

#### **(Problems which Invention tries to Solve)**

As described above, thin film ceramic insulator EL device can be driven by low voltage and it has very high stability against insulator breakdown. However, when applied voltage is increased slowly, increase in brightness is slower than that of thin film EL device of prior art, fabricated on glass substrate. Simple matrix system is used in dot matrix panel for display purposes using thin film EL device of prior art. In this system, steeper is initial increase in brightness responding to applied voltage increase, higher is display quality and better is contrast, without luminescence error. Also, because distinction between luminescence and non-luminescence can be done by very small voltage modulation, electrical power required to distinguish luminescence from non-luminescence is small, and it is convenient. Therefore, compared with thin film EL device of prior art, thin film ceramic insulator EL device, which has slow rise in brightness responding to applied

voltage, was disadvantageous and not suitable for dot matrix panel using simple matrix system.

#### **(Method to Solve Problems)**

According to this invention, EL device has sintered ceramic body of high dielectric constant, used as insulator layer, and electrode, formed on one side of this insulator layer, and at least luminescence and transparent electrode layers, in this order, on other side. EL device, which is characterized by the fact one insulator surface where luminescence and transparent electrode layers are formed is polished as mirror or approximately as mirror, can be obtained.

#### **(Operation of Invention)**

We were successful in improving rate of increase in brightness, in thin film ceramic insulator EL device of prior art, at beginning of voltage application, to almost as sharp as that of thin film EL device of prior art. This was done by polishing ceramic insulator surface, where thin film is to be formed on, as mirror or approximately as mirror. We discovered causes for poor rise in brightness in ceramic insulator thin film EL device and we have achieved, for the first time, ceramic insulator thin film EL device with sharp rise in brightness. In thin film ceramic insulator EL device, thin film layers used to be formed directly on surface of sintered ceramic insulator layer, and electric field accumulated in dip of grain boundary on ceramic insulator surface. Because of this, luminescence started from grain boundary area when applied voltage was increased. When voltage was increased further, luminescence also started from above crystalline particles in addition to grain boundary, and luminescence eventually spread over whole surface area causing luminescence to start unevenly on luminescence surface, depending on different applied voltage. This was causing slow increase in brightness, and was different from thin film EL device of prior art, where whole surface starts to show luminescence uniformly. By polishing ceramic insulator layer surface as mirror or almost mirror, electric field accumulation at grain boundary dip was eliminated. As a result, non-uniform voltage at start of luminescence over surface area was eliminated, and increase in brightness became better and closer to that of thin film EL device with glass substrate of prior art.

#### **(Embodiment)**

This invention will be explained using figures. Figure 1 is structure cross section of one application. In Fig. 1, 1 is ceramic substrate. Mixture of alumina and boro-silicate glass, frequently used materials, was used as ceramic material. 2 is internal electrode of approximately 3  $\mu\text{m}$  thick, made of inexpensive silver-palladium alloy. 3 is ceramic insulator layer of high dielectric constant, and its thickness was 35  $\mu\text{m}$ . Any material which has high dielectric constant, such as PZT series,  $\text{BaTiO}_3$  series or  $\text{PbTiO}_3$  series, may be used. In this application, compound perovskite containing Pb was used because low temperature sintering was possible. Relative dielectric constant was very high and 15,000 at room temperature. Ceramic substrate 4 was obtained by sintering ceramic base 1, internal electrode 2 and ceramic insulator layer 3, described above, together. 5 is mirror surface of ceramic insulator layer of this invention. In order to obtain mirror surface, it

was polished lightly with #6000 SiC polishing powder, then it was finished with buff and diamond paste. Surface roughness was  $0.05 \mu\text{m} \sim 0.15 \mu\text{m}$ . 6 is intermediate layer which prevents diffusion of harmful metal ions from ceramic insulator layer 3 to luminescence layer 3. At the same time, it improves brightness characteristics of the device, and it was made of film  $0.3 \mu\text{m}$  thick with mixture, TaSiO ( $\text{Ta}_2\text{O}_5$ ) and  $\text{SiO}_2$ , by sputtering method on ceramic insulator layer 3. 7 is luminescence layer formed on intermediate layer 6 by vacuum vapour deposition method, and was made of ZnS containing approximately 1 mol % Mn. The thickness was  $0.4 \mu\text{m}$ . 8 is insulator layer formed on luminescence layer 7, and was made of same TaSiO using same method as layer 6. The thickness was  $0.2 \mu\text{m}$ . Transparent electrode 9 made of ITO was formed on surface of insulator layer using sputtering method. Figure 2 shows voltage-brightness characteristics of two EL devices; one manufactured as described above and another using the same lot material but surface of ceramic insulator layer was not polished. In Fig. 2, (A) is characteristics of EL device without polishing ceramic insulator layer, and (B) is that of this invention where thin film was formed after polishing ceramic insulator layer surface as mirror. In (B), luminescence starting voltage was higher but the increase in brightness in response to applied voltage increase, or the rise of brightness, was faster and it was suitable for matrix drive. The effectiveness of this invention was clear.

Materials to fabricate thin film ceramic insulator EL device, size and fabrication method were described only to confirm the effect of polishing ceramic insulator layer surface as mirror and they are not limited to those in application of this invention.

In this example, thin film ceramic insulator EL device, with intermediate layer 6 and insulator layer 8, was discussed. However, this invention is, of course, effective with device without one or both of intermediate layer 6 and insulator 8.

It is also possible to delete ceramic base 1, and to make ceramic insulator layer 3 thicker and mechanical strength of only insulator layer 3 is strengthened, or to laminate this to separate reinforcing board.

#### **(Merit of Invention)**

As described above, increase in brightness at beginning of voltage application has been improved, therefore, luminescence characteristics reaching matrix drive has been obtained by EL device using ceramic sintered body of high dielectric constant as insulator layer, and polishing the surface, of insulator layer where thin film is to be formed, as mirror or almost mirror.

#### **Brief Explanation of Figures**

Figure 1 shows cross section of ceramic insulator thin film EL device application demonstrating this invention. Figure 2 shows voltage v.s. brightness characteristics of ceramic insulator thin film EL device and that of thin film ceramic insulator EL device of prior art. Figure 3 shows cross section of ceramic insulator thin film EL device of prior



art.

1. ... ceramic base
- 2 ... internal electrode,
- 3 ... ceramic insulator layer,
- 4 ... ceramic substrate,
- 5 ... polished surface,
- 6 ... interface layer,
- 7 ... luminescence layer,
- 8 ... insulator layer,
- 9 ... transparent electrode,
- 10 ... alternate current source

- |              |             |
|--------------|-------------|
| 1...セラミック基部  | 2...内部電極    |
| 3...セラミック絶縁層 | 4...セラミック基板 |
| 5...研界面      | 6...介在層     |
| 7...発光層      | 8...絶縁層     |
| 9...透明電極     | 10...交流電源   |

代理人 弁理士 内原 晋



第 1 図  
Fig. 1

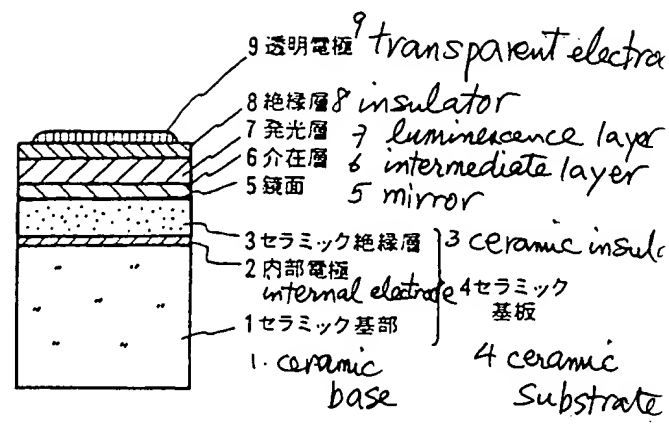


Fig. 2  
第 2 図

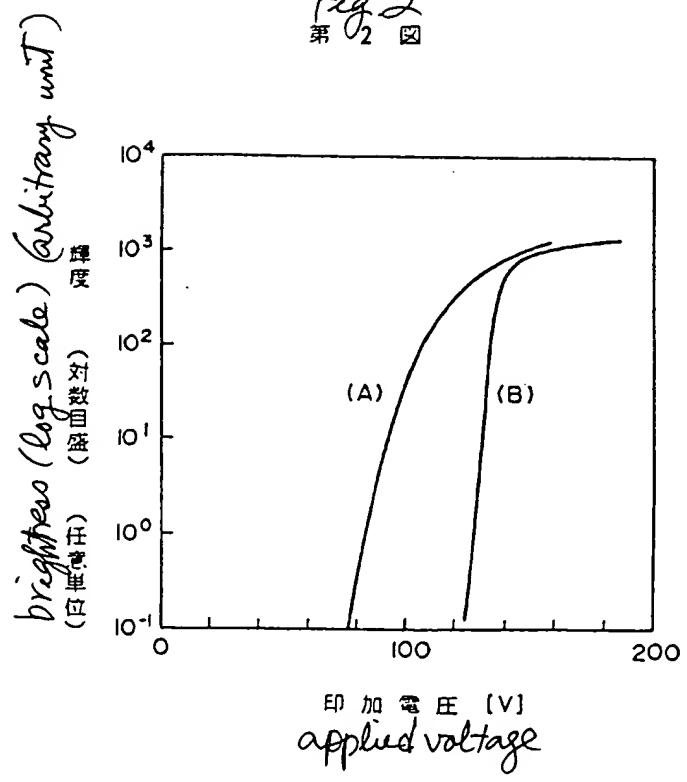


Fig. 3  
第 3 図

